

# 高压氢激发态之间的受激喇曼散射

楼祺洪 辜红平 高鸿奕  
(中国科学院上海光学精密机械研究所)

## 提 要

本文采用非稳腔输出的 XeCl 准分子激光, 首次观察到高压氢高激发态之间的受激喇曼散射, 并讨论了它们产生的条件。

关键词: 准分子激光; 受激喇曼散射; 光谱。

## 一、引 言

高压气体中的受激喇曼散射作为一种扩展激光光谱频域的有效方法得到了深入细致和广泛的研究。自从 Minch 等<sup>[1]</sup>报道了分子气体的受激喇曼散射以来, 由于氢气具有较大的频移和较高的散射截面, 对它的研究尤为广泛。特别是近几年来, 采用准分子激光作泵浦源, 可以有效地从紫外光转换到蓝绿光波段, 在海水通讯方面有广泛的应用前景。

在常温下, 氢分子基本上处于振动基态, 已报道的受激喇曼散射实验都相应于  $Q_{01}$  或  $Q_{12}$  振动跃迁<sup>[1~3]</sup>。本文首次观察到在较高的泵浦功率密度下, 氢分子高激发态之间跃迁所产生的受激喇曼是散射谱线。这些谱线分布在泵浦光, 斯托克斯光及反斯托克斯光两侧, 其产生与泵浦光强度及氢气压力有关。分析表明, 这些谱线不仅与  $Q_{01}$  振动跃迁有关, 而且与  $Q_{12}$ ,  $Q_{23}$  振动跃迁有关。这些谱线的获得丰富了用受激喇曼散射频移产生的波线。

## 二、实验装置和结果

本实验所用的泵浦光是 X 光子电离 XeCl 准分子激光, 输出波长为 308 nm, 喇曼池为充入 1~17 atm 氢气长度为 1.2 m 的不锈钢管。

为了提高泵浦光的可聚焦功率密度, 激光器采用非稳腔结构, 输出光束用  $f=1.3$  m 透镜聚焦, 焦区的功率密度可达数百 MW/cm<sup>2</sup>。实验的详细情况可参见文献[3]。

采用上述结构, 作者曾获得高效率的喇曼转换<sup>[3]</sup>, 本文除观察到上述结果外, 在泵浦光, 斯托克斯光及反斯托克斯光附近发现若干谱线。图 1 给出它的典型结果。如果将泵浦光称为  $L_p^0$ , 则在短波长方向的谱线依次称为  $L_p^{1s}$ ,  $L_p^{2s}$ 。而在长波长方向的谱线依次称为  $L_p^{1a}$ ,  $L_p^{2a}$ 。对于一阶斯托克斯光 s1, 二阶斯托克斯光 s2 以及反斯托克斯光 As1 周围的线均可用上述方法标记, 其下标分别为 s1, s2 及 As1。

我们首先关心的是这些谱线的波长以及相邻的间隔。采用汞灯光谱作为定标谱线, 并

用线性内插法计算其波长,其结果列于表1。

一般而言,泵浦光由四条谱线组成,分别对应XeCl准分子(0—0)307.7nm, (0—1)

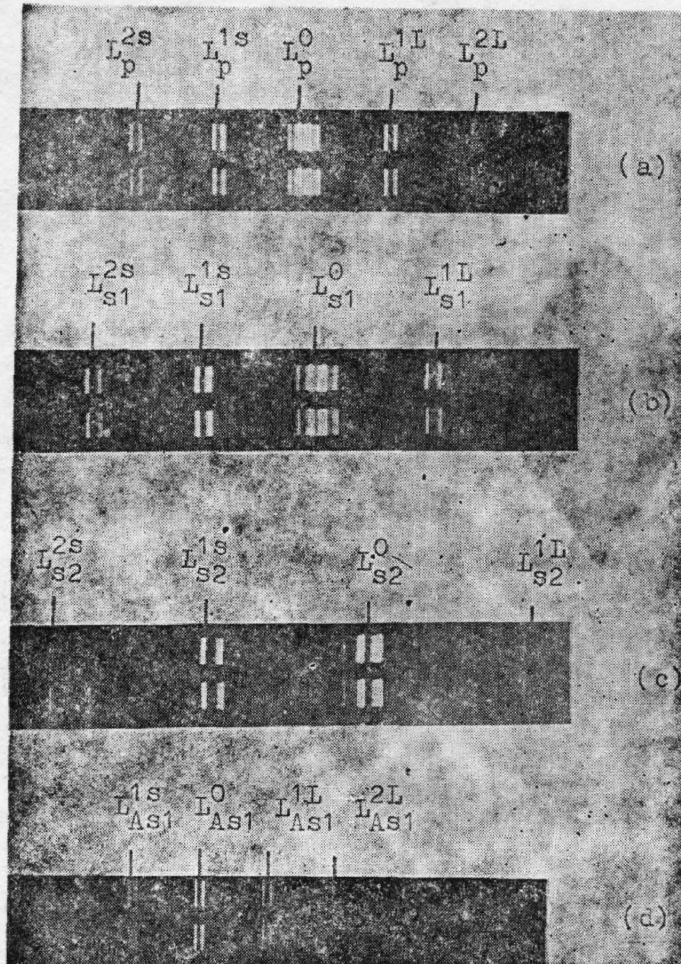


Fig. 1 Spectrum of Stimulated Raman Scattering in  $H_2$   
(a) pump region; (b) s1; (c) s2 and (d) As1

307.9 nm, (0—2) 308.2 nm 和 (0—3) 308.4 nm 跃迁<sup>[5]</sup>, 其中位于中间的(0—1)和(0—2)的跃迁为最强。因此观察到的新谱线亦由二条强的相邻谱线组成。由表1可见,这些谱线之间的相邻间隔大致在  $230\text{ cm}^{-1}$  和  $235\text{ cm}^{-1}$  附近。

为了弄清这些谱线的来源,我们还进行了以下实验:

(1) 将氢气用纯度为 99.99% 的高纯氢代替,发现在同等条件下,这些谱线的强度和结构与普通氢气无明显区别,从而排除了由氢气中杂质产生上述谱线的可能性。

(2) 在氢气中混入 10%~50% 的氩气,发现表1中所列的谱线间间隔  $\Delta\nu$  值不变,表明这些谱线是同氢气本身有关。

(3) 图2是泵浦能量减小到 50 mJ 的实验结果,其泵浦能量比图1采用的值小 5~6 倍。此时,泵浦光周围的谱线消失,而斯托克斯光附近仅出现  $L_{s1}^1s$  一组谱线。进一步减小泵浦光能量,这组谱线也消失。

Table 1 Observed wavenumbers between the Stimulated Raman scattering of excited states of  $H_2$

Symbol	Wavelength (nm)	$\Delta\nu$ ( $\text{cm}^{-1}$ )	Symbol	Wavelength (nm)	$\Delta\nu$ ( $\text{cm}^{-1}$ )
$L_p^{2L}$	312.69	230.9	$L_{s1}^{2L}$	359.38	231.7
	312.43			359.02	
$L_p^{1L}$	310.45	235.8	$L_{s1}^{1L}$	356.40	235.2
	310.19			356.07	
$L_p^0$	308.19	235.6	$L_{s1}^0$	353.44	235.5
	307.94			353.11	
$L_p^{1s}$	305.97	231.4	$L_{s1}^{1s}$	350.52	230.8
	305.72			350.20	
$L_p^{2s}$	303.82		$L_{s1}^{2s}$	347.72	
	303.57			347.40	

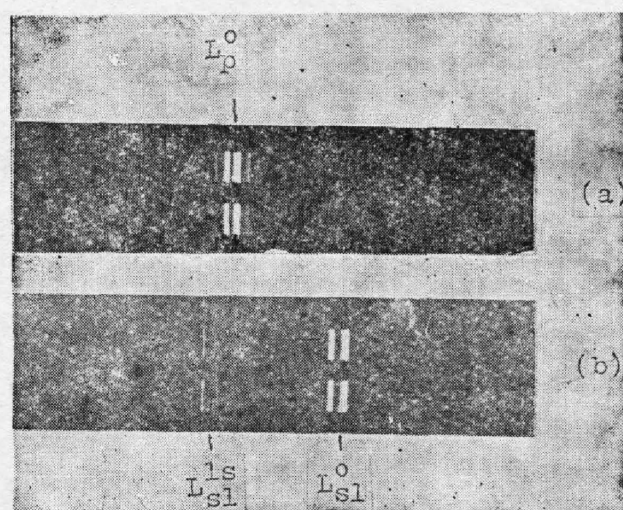


Fig. 2 Spectrum of Stimulated Raman Scattering in H<sub>2</sub> with 50 mJ pump energy  
(a) pump region and (b) s1

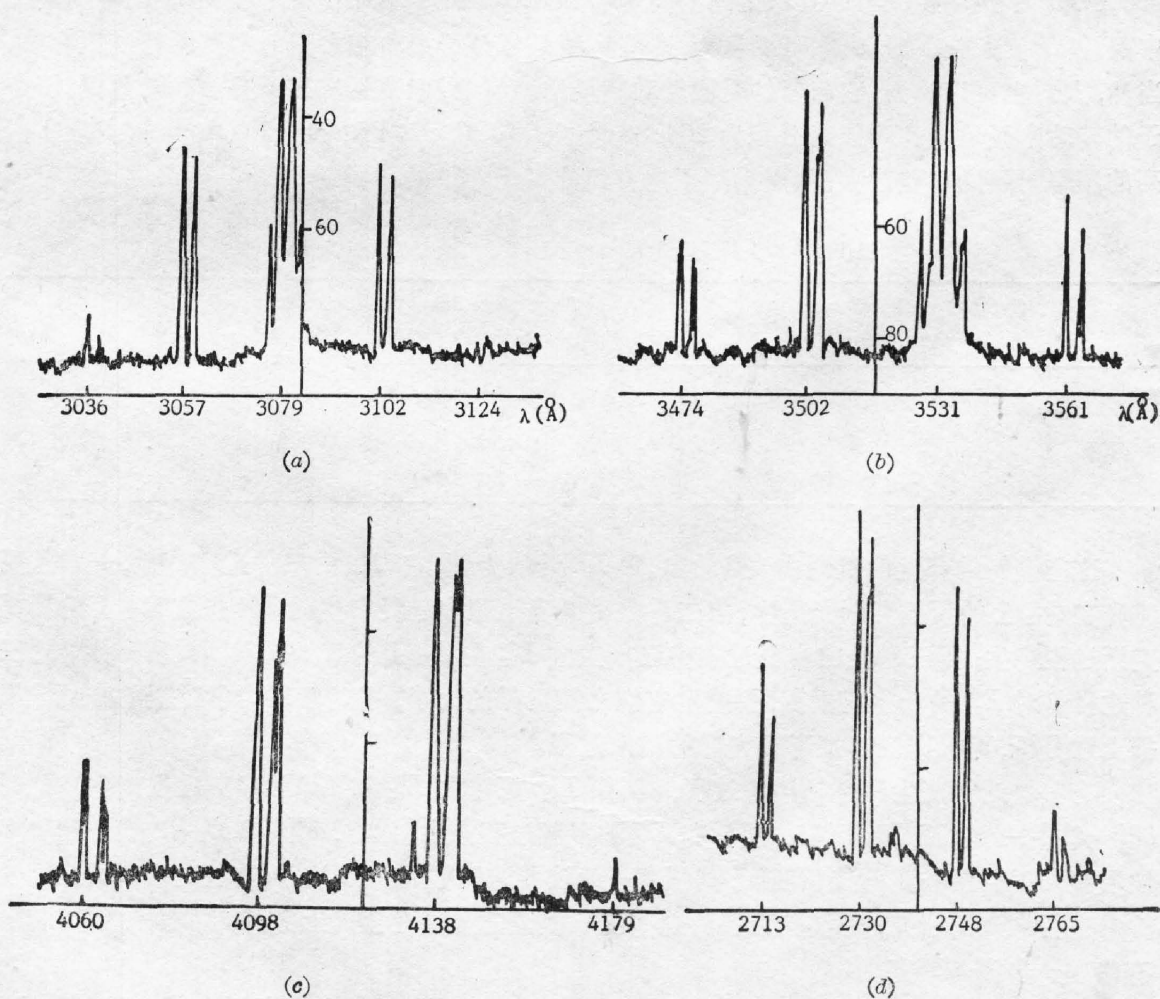


Fig. 3 Photodensitometer records of the SRS spectrum  
(a) pump region; (b) s1; (c) s2 and (d) As1

当氢气压力从 12 atm 下降到 4 atm, 谱线条数及它们之间的相对强度无明显变化。但是当氢气压力下降到 2 atm 时, 谱线条数减少, 如图 3 中  $L_p^s$  消失。对于斯托克斯 s1 和 s2 以及反斯托克斯 As1, 亦有类似结果。

(4) 用黑度计对上述谱板进行扫描, 其结果由图 3 给出。虽然对于泵浦光附近的边带谱线, 在短波长一方与长波长一方具有比较接近的强度分布。对于 s1 及 s2, 短波长一方的谱线强度大于长波长一方的谱线强度; 而对于反斯托克斯谱线 As1, 则呈现相反的趋势, 即短波长一方的谱线强度小于长波长一方的谱线强度。

### 三、分析和讨论

根据以上实验, 可以分析出这些谱线来源于氢分子本身的受激喇曼散射。氢分子的第一振动态到基态的能量间隔为  $4155 \text{ cm}^{-1}$ , 但是较高的振动激发态之间能量差比上述数值要小。如表 2 所示  $Q_{12}(1)$  和  $Q_{23}(1)$  分别为  $3920.0 \text{ cm}^{-1}$  和  $3689.6 \text{ cm}^{-1}$ 。它们之间的间隔为  $230.4 \text{ cm}^{-1}$ , 而  $Q_{12}(1)$  与  $Q_{01}(1)$  之间的间隔为  $235.0 \text{ cm}^{-1}$ 。不难看出, 上述两个间隔与表 1 中两种  $\Delta\nu$  值十分接近。由此可以认为, 这些谱线是氢分子振动态之间的喇曼跃迁过程有关。当然, 人们也可以认为, 它与氢的受激转动喇曼谱线有关, 但根据双原子分子光谱数据, 氢分子的转动喇曼谱线间隔依次分别为  $264.82 \text{ cm}^{-1}$ ,  $243.13 \text{ cm}^{-1}$  和  $243.06 \text{ cm}^{-1}$  等, 与表 1 所列的频率间隔比相差甚大, 从而排除了这方面的可能性。

Table 2 Calculated results of vibrational transitions

Symbol of the vibrational transition	Transition energy ( $\text{cm}^{-1}$ )	$\Delta\nu$ ( $\text{cm}^{-1}$ )
$Q_{01}(1)$	4255.0	235.0
$Q_{12}(1)$	3920.0	230.4
$Q_{23}(1)$	3689.6	

这些谱线的产生的机制由表 3 给出。以  $L_{s1}^s$  谱线为例, 它可以由三种过程产生, 一种是泵浦光在  $Q_{12}$  上的斯托克斯光产生, 第二种是由喇曼过程中已经产生的  $L_p^s$  光在  $Q_{01}$  上的斯托克斯过程产生; 第三种是由喇曼过程中已产生的  $L_{s2}^s$  在  $Q_{01}$  上的反斯托克斯过程产生。这三种途径都对  $L_{s1}^s$  的产生有贡献, 要确定它们之间贡献的大小, 有待于动力学过程的分析。根据上述分析, 可根据表 3 来了解它们的激发过程。

有些谱线的产生还包括混频过程, 例如  $L_{s1}^{1L}$  可以由  $L_{s1}^0$  和  $L_{s1}^s$  的混频过程产生, 此时  $\omega_{s1}^{1L} = 2\omega_{s1}^0 - \omega_{s1}^s$ ; 而  $L_{s1}^{2L}$  可以由  $L_{s1}^0$  和  $L_{s1}^{2s}$  的混频过程产生, 此时,  $\omega_{s1}^{2L} = 2\omega_{s1}^0 - 2\omega_{s1}^{2s}$ 。这种多波混频作用需要一定的位相匹配, 其强度一般较弱。严格而言, 可以从这些光谱线的空间结构来进行深入的研究, 但实验上要将这些波长接近的谱线在空间上分开, 存在一定的困难, 有待进一步深入研究。

表 3 中有些谱线与  $Q_{23}$  有关, 如  $L_p^{2L}$  是由  $L_{s1}^0$  泵浦光在  $Q_{23}$  上的斯托克斯过程产生, 而  $L_{s1}^{2s}$  和  $L_{s1}^{2L}$  等谱线的产生也包含  $Q_{23}$  过程的参与。

Table 3 Excitation processes for Stimulated Raman scattering of excited states of hydrogen

	Symbol	Pump beam	Transition	
			Stokes	Anti-S
UV	$L_p^{2s}$	$L_{s1}^{0s}$		$Q_{01}$
	$L_p^{1s}$	$L_{s1}^{1s}$ $L_{As1}^{1s}$	$Q_{01}$	$Q_{01}$
	$L_p^{1L}$	$L_{s1}^0$ $L_{s2}^0$ $L_{As1}^{1L}$	$Q_{01}$	$Q_{12}$ $Q_{01}+Q_{12}$
	$L_p^{2L}$	$L_{s1}^0$		$Q_{23}$
As1	$L_{As1}^{1s}$	$L_p^{1s}$		$Q_{01}$
	$L_{As1}^0$	$L_p^0$		$Q_{01}$
	$L_{As1}^{1L}$	$L_p^0$ $L_{s1}^0$ $L_p^{1L}$		$Q_{12}$ $Q_{01}+Q_{12}$ $Q_{01}$
	$L_{As1}^{2L}$	$L_p^0$ $L_p^{2L}$		$Q_{23}$ $Q_{01}$
s2	$L_{s2}^{1s}$	$L_{s1}^0$ $L_p^0$ $L_{s1}^{1s}$	$Q_{23}$ $Q_{01}+Q_{12}$ $Q_{01}$	
	$L_{s2}^{2s}$	$L_{s1}^0$ $L_{s1}^{2s}$	$Q_{23}$ $Q_{01}$	
	$L_{s2}^0$	$L_{s1}^0$	$Q_{01}$	
	$L_{s2}^{1L}$	$L_{s1}^{1L}$	$Q_{01}$	
s1	$L_{s1}^{1s}$	$L_p^0$ $L_p^{1s}$ $L_{s2}^{1s}$	$Q_{12}$ $Q_{01}$	$Q_{01}$
	$L_{s1}^{2s}$	$L_p^0$ $L_p^{2s}$ $L_{s2}^{2s}$	$Q_{23}$ $Q_{01}$	$Q_{01}$
	$L_{s1}^0$	$L_p^0$	$Q_{01}$	
	$L_{s1}^{1L}$	$L_{s2}^0$ $L_p^{1L}$	$Q_{01}$	$Q_{12}$
	$L_{s1}^{2L}$	$L_p^{2L}$ $L_{s2}^0$	$Q_{01}$	$Q_{23}$

从喇曼散射的物理过程来分析, 这些谱线的强弱取决于它们的转换效率, 而后者又取决于这些子过程泵浦束的光强和喇曼介质的粒子数密度。从表 3 可知, 对于 s1 及 s2, 其短波长边的泵浦光 (包含  $L_p^0$ ,  $L_{s1}^0$ ) 要强于长波边的泵浦光 (不包含上标为 0 的泵浦光); 而对于 As1 情况正好相反, 其长波长区的泵浦光包含  $L_p^0$  和  $L_{s1}^0$ 。这就从定性上解释了图 3 的结果。

在常温下, 氢分子第一振动能级的寿命可以表达为

$$\tau = 1.1 \times 10^{-3} / P \text{ sec}$$

式中  $P$  为以大气压为单位的气压值。在本实验所用的气压范围内, 寿命在  $10^{-4} \sim 10^{-5}$  sec 范围内, 很容易发生喇曼跃迁饱和。根据文献[4]的分析, 在 20 ns 时间间隔内, 第一振动态激发态上就会积累高于热平衡的超量粒子数分布, 从而进一步从  $v=1$  振动态到  $v=2$  振动态激发喇曼跃迁。氢分子的第二振动态寿命大于 ns<sup>[7]</sup> 量级, 在泵浦脉冲下也可以积累起超过喇曼阈值的足够的粒子数。

当氢气中掺入其它缓冲气体时, 由于碰撞加宽, 会使氢分子振动激发态寿命减小。当氩气比例超过 50% 时, 振动激发态寿命变小, 从而使边带谱线减弱, 甚至消失。

总之, 本文观察到的边带谱线, 不仅提供了可供选择的一系列不同频率的受激辐射谱线, 而且通过多波混合激发过程的研究, 可以加深对喇曼过程的研究。

### 参 考 文 献

- [1] Minck *et al.*; *Appl. Phys. Lett.*, 1963, **3**, No. 10, 181.
- [2] 楼祺洪等;《光学学报》, 1985, **5**, No. 12, 1069.
- [3] Xusan Cheng *et al.*; *Appl. Phys. Lett.*, 1987, **51**, No. 2, 76.
- [4] H. Rieger; *IEEE J. Quart. Electron.*, 1986, **QE-22**, No. 3, 405.
- [5] U. Fink *et al.*; *J. Mol. Spectr.*, 1965, **18**, No. 4, 384.
- [6] F. Demartini *et al.*; *Phys. Rev. Lett.*, 1966, **17**, No. 3, 117.
- [7] J. R. Murray *et al.*; *J. Mol. Spectr.*, 1972, **42**, No. 1, 1.

## Stimulated Raman Scattering between excited states of hydrogen at high gas pressure

LOU QIEONG, GU HONGPING AND GAO HONGYI

(Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Academia Sinica)

(Received 14 September 1988; revised 31 October 1988)

### Abstract

Stimulated Raman scattering between high excited states of hydrogen at high gas pressure pumped by XeCl excimer laser was observed for the first time. An unstable laser cavity was adopted for improving the beam quality of the pump laser. Conditions for generating these lines were discussed.

**Key words:** excimer laser; stimulated Raman scattering; spectrum.